

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-141385

(43) 公開日 平成8年(1996)6月4日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 J 3/06	Q			
C 0 1 B 31/06	A			
C 3 0 B 9/10				
29/04	U	7202-4G		

審査請求 未請求 請求項の数 5 F D (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平6-312572

(22) 出願日 平成6年(1994)11月22日

(71) 出願人 000220262  
東京瓦斯株式会社  
東京都港区海岸1丁目5番20号  
(71) 出願人 000222842  
東洋炭素株式会社  
大阪府大阪市西淀川区竹島5丁目7番12号  
(71) 出願人 390024914  
東京ガスケミカル株式会社  
東京都新宿区西新宿三丁目7番1号  
(72) 発明者 中村 和郎  
神奈川県横浜市南区永田台27-19  
(74) 代理人 弁理士 加茂 裕邦

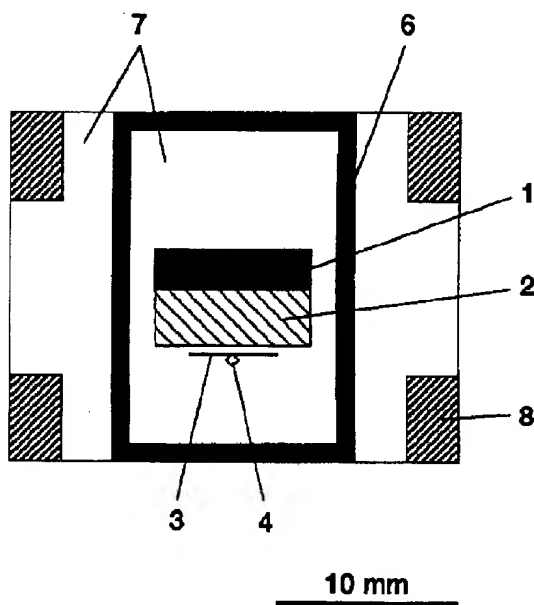
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ダイヤモンドの合成方法

(57) 【要約】

【構成】ダイヤモンド安定領域内の高温高圧条件下、温度差法によって炭素源から種結晶上にダイヤモンドを成長させることによりダイヤモンド単結晶を合成する方法において、その炭素源としてフレーク状の熱分解炭素を使用する。

【効果】本発明の炭素源であるフレーク状熱分解炭素は、従来のように前処理を必要とすることなく、有効にダイヤモンド単結晶を合成することができる。また炭素源としてのフレーク状熱分解炭素を製造するその時点においてその比率を選ぶことで、<sup>12</sup>Cと<sup>13</sup>Cとを任意の比率で含むダイヤモンド単結晶を合成することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】ダイヤモンド安定領域内の高温高压の条件下、温度差法により炭素源から種結晶上にダイヤモンドを成長させるダイヤモンド単結晶の合成方法において、その炭素源としてフレーク状の熱分解炭素を使用することを特徴とするダイヤモンド単結晶の合成方法。

【請求項2】上記フレーク状の熱分解炭素が炭化水素又は一酸化炭素を熱分解して得られたフレーク状熱分解炭素である請求項1記載のダイヤモンド単結晶の合成方法。

【請求項3】上記炭化水素又は一酸化炭素が、同位体組成を変化させた炭化水素又は一酸化炭素である請求項2記載のダイヤモンド単結晶の合成方法。

【請求項4】上記炭化水素がメタンである請求項2又は3記載のダイヤモンド単結晶の合成方法。

【請求項5】ダイヤモンド安定領域内の高温高压の条件下、温度差法によりフレーク状の熱分解炭素からなる炭素源から種結晶上に成長させることにより合成された単結晶ダイヤモンド。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、特定の炭素源を原料とし、高温、高压を使用する温度差法によりダイヤモンド単結晶を合成する方法に関し、より具体的には特定の熱分解炭素を炭素源原料とし、ダイヤモンド安定領域内の高温高压下、温度差法により種結晶上にダイヤモンドを成長させるダイヤモンド単結晶の合成方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】ダイヤモンドは、立方晶系のダイヤモンド型構造でいわゆるダイヤモンド光沢をもち、宝石として重宝されているほか、硬度（モース硬さ10で、既知物質中最も硬い）、耐摩耗性がずば抜けて高いため、砥石、研磨材、バイト、ダイス、ボーリング用ビット、切削工具用等の工具やコーティング工具として用いられ、また高純度のものは熱伝導率が高いことからヒートシンク材として電子部品に組み込まれ、さらには高音発生用スピーカー振動板等へも利用されている。

【0003】ダイヤモンドは、天然のものだけではなく、合成ダイヤモンドも製造され市販されている。この合成ダイヤモンドの製造方法としては大きく分けて高压法と低压法とがあるが、高压法には衝撃高压法（動的高压法：爆薬の爆発力等により発生する瞬時の高压を利用）や静的高压法があり、さらにこの静的高压法には直接変換法や融剤法がある。このうち直接変換法は黒鉛単体に高温高压をかけて直接ダイヤモンドに変換させるものであるが、融剤法は、Fe、Co、Ni等の熔融金属（含：合金）に炭素を溶解させたのち、ダイヤモンドを析出させる方法であり、この融剤法には膜成長法と温度差法がある。

【0004】まず、上記膜成長法は、黒鉛とダイヤモンド

ドが熔融金属への溶解度を異にすることを利用した方法であり、高压下で熔融金属と黒鉛を接触させておくと、黒鉛が溶解、拡散してゆき、その直後に（熔融金属膜の後ろに）ダイヤモンドを析出させる方法である。この膜成長法では直径0.1～1mm程度の結晶が約10分程度で成長し、現在人工ダイヤモンドとして販売されているものの大部分がこの方法によるものと云われる。

【0005】一方、温度差法では、温度の違いによりダイヤモンドが熔融金属への溶解度を異にすることを利用した方法であり（温度差：20～50℃程度）、高压下で加熱された熔融金属相に対し、その一方を高温に保持して原料の炭素を溶解させ、他方をより低温としてダイヤモンドを析出させる方法である。この温度差法は大粒のダイヤモンド単結晶を育成するのに適した方法であり、この方法による大型の単結晶が実用化されている。

【0006】温度差法は、例えば特公昭59-6808号公報に記載のとおり、炭素状態図のダイヤモンド安定領域内の高温高压下（ここでの好適な圧力及び温度範囲は、それぞれ55～57kbar及び1330～1430℃とされている）、金属溶媒の中に温度勾配つけ、その高温域で炭素源を溶解させるとともに、低温域に置かれたダイヤモンド種結晶上に大粒のダイヤモンドを成長させるものであるが、この技術においては種結晶の上部に核形成抑制用遮断層及び隔離用遮断層を配置することにより、そこで発生する自発的核の生成を抑制し、また種結晶の溶解をダイヤモンド成長が発現するまで抑制するようにされている。

【0007】このように温度差法によれば、炭素源から比較的大粒のダイヤモンド単結晶を得ることができ、特に上記特公昭59-6808号公報では宝石級のダイヤモンド製品を製造する方法及び装置に係るものとして説明されているが、この技術における炭素源としては黒鉛、ダイヤモンド又はその混合物が使用される。また特開平4-108532号公報には、特定の炭素源を使用することにより、同じく温度差法によって高い同位体純度を持った熱伝導率の高い単結晶ダイヤモンドを製造する技術が提案されているが、ここでのその炭素源としては好ましくは薄膜法（CVD法）で得られたダイヤモンドを使用すると記載されている。

【0008】図5は、この温度差法についてこれまで紹介された「試料構成」等の一例を示すものである（「資源処理技術」Vol. 37, No. 1（'90-春）、p. 23～28）。図5中、1は炭素源、2は金属溶媒、3は白金箔、4は、ダイヤモンド種結晶である。この構成試料をNaCl成形体のカプセルに入れ、このカプセルが筒形のヒーターの中に炭素源がヒーターの中央にくるように詰められるが、筒形のヒーターでは中央部が高温で両端が低温となることから、この温度分布により金属溶媒に温度差がつけられる。

【0009】次いで、それを高压容器中に詰め、約6万

気圧に加圧した後、約1400℃に加熱して15～24時間保持すると、図5中、符号5で示すような2～3mmの結晶が得られるが、この場合上記白金箔3は、結晶育成開始時に種結晶が金属溶媒に溶解して消失しないように種結晶を保護するためのものと説明されている。なお、上記文献によれば、この白金箔3（これは前述特公昭59-6808号公報における隔離用遮断層に相当するものと解される）は、時間とともに次第に金属溶媒に溶け込んでなくなるが、そのときには金属溶媒は炭素で飽和されているため、ダイヤモンド種結晶4が溶解されることはない。

【0010】ところで、ダイヤモンド単結晶を温度差法によって合成、製造する場合、その炭素源としてはダイヤモンド、黒鉛又は熱分解炭素が使用される。しかし、このうち特に熱分解炭素の場合には、特別な前処理が必要不可欠であり、少なくとも温度差法においては、この前処理を施したものでなければ、この熱分解炭素を炭素源原料としてダイヤモンドを合成することはできない。

【0011】上記前処理としては、例えば熱分解炭素の粉末を銅製ダイを用いて圧搾し、グラファイトのカプセル中に置き、誘導加熱炉を用いて真空中温度1800～2000℃に加熱してアニーリングする（J. Phys. C: Solid State Phys. 21, p. 1363～1376 (1988)、Physical Review Letters Vol. 65, No. 7, p. 891～894 (13 Aug. 1990)）等の手法が採られるが、何れにせよ、そのような前処理を経たものでなければ、熱分解炭素から直ちにダイヤモンド単結晶を生成させることは不可能であった。

【0012】本発明者は、原料炭素源の種類如何を含めて、高温高压下、上述温度差法によりダイヤモンド単結晶を製造する手法として、以上の諸事実をも前提に各種方面から実験、研究を続けているうち、全く予想外にも、その原料炭素源として、熱分解炭素のうちでも特定の熱分解炭素を用いることにより、これが上記のような前処理を必要とすることなく、ダイヤモンド単結晶を有効に合成し得ることを見出し、本発明に到達するに至ったものである。

【0013】

\*

熱分解炭素 の 型 類	光学顕微鏡 による構造	密度(かさ密度) (g/cm <sup>3</sup> )	BET表面積 (m <sup>2</sup> /g)	BAF値	C結の格子定数 (Å)
フレーク状	Columnar	1.10	3.1	3～20	6.8～7.0
スート状	非Columnar	0.87	55.6	約1	6.8～7.0

【0018】なお、上記「BAF」とは、X線回折手法※50※を使用して求められ、例えば(002)回折の強度

\*【発明が解決しようとする課題】すなわち、本発明は、ダイヤモンド単結晶を温度差法により合成する方法において、その原料炭素源としてフレーク状熱分解炭素を使用することにより、従来のように前処理を必要とすることなく、また前記のように薄膜法により予め製造することが必要なダイヤモンド微結晶を経ることなく、ダイヤモンドを有効に合成、製造し得るダイヤモンド単結晶の合成方法を提供することを目的とする。

【0014】

【課題を解決するための手段】本発明は、ダイヤモンド安定領域内の高温高压の条件下、温度差法により炭素源から種結晶上にダイヤモンドを成長させるダイヤモンド単結晶の合成方法において、その炭素源としてフレーク状の熱分解炭素を使用することを特徴とするダイヤモンド単結晶の合成方法を提供し、またこの合成方法で得られた単結晶ダイヤモンドを提供するものである。

【0015】ここで本発明において炭素源として使用する上記フレーク状熱分解炭素は、高濃度のメタン、エタン、プロパン、ベンゼン、アセチレンその他の炭化水素ガス又は一酸化炭素（キヤリアガスを使用せず、濃度100%の炭化水素ガス又は一酸化炭素である場合を含む）を、熱分解炉中で、例えばメタンの場合分解処理温度1800～2000℃、炉内圧力1～5torrで熱分解させて黒鉛シート等の基材上に沈積させ、次いでその基材から剥離することにより得られるもので、図1(a)のとおりフレーク状をし、表1に示す特性を有するものである。なお表1には、比較のためスート状熱分解炭素の特性についても記載している。

【0016】表1のとおり、フレーク状熱分解炭素は、Columnar状（円柱状、光学顕微鏡による）構造を有し、密度（かさ密度）1.10g/cm<sup>3</sup>、BAF値（Bacon Anisotropy Factor、結晶の異方性係数）3～20、格子定数6.8～7.0Å（オングストローム）を有するものであり、本明細書中フレーク状熱分解炭素とは、フレーク状でこれらの特性を備える熱分解炭素を意味している。

【0017】

【表 1】

(I)と試料のC軸方向が沈積面に垂直な方法からずれる角度( $\phi$ )との関係である配向関数「 $I(\phi)$ 」を求め、下記式により算出される値である。このBAF値は、熱分解炭素等の選択配向性の強い材料の結晶異方性を定量的に表わすのに有効な手段であり、この数値が大\*

$$BAF = 2 \int I(\phi) \cos^2 \phi \sin \phi d\phi / \int I(\phi) \sin^2 \phi d\phi$$

【0020】これに対して、熱分解炉内圧力を20~40 torrとし、前記と同じく原料ガスとしてメタンガス等の炭化水素ガスを使用し、その他の条件を同様にしても同じく熱分解炭素は得られるが、これは図1(b)のとおりの基材から剥離してもスート状で、Columnar構造を持たず、かさ密度=0.87 g/cm<sup>3</sup>、BAF=1、格子定数6.8~7.0 Å(オングストローム)を有するものであり、その理由は不明であるが、後述《比較例》のとおりの、このスート状熱分解炭素を用いて温度差法を適用してもダイヤモンド単結晶は全く生成することはできない。

【0021】図2は、上記両熱分解炭素の一例についてCuK $\alpha$ 線によりX線回折を行った結果を示すものである〔図中、横軸はX線が回折する角度である $2\theta$ (=degree)を、縦軸は、X線回折ピークの強度をcount数単位で示し、相対的な値である〕。このうち図2(a)はフレーク状熱分解炭素のX線回折図、図2(b)はスート状熱分解炭素のX線回折図であり、比較対比のため、図2(a)及び(b)中の下部にJCPDSカード(米国、1985)による黒鉛相のX線回折データを掲記している。図2(a)~(b)から明らかとなり、両者は結晶構造上はほぼ同じであるが、双方とも黒鉛相ではなく(すなわちJCPDSによる黒鉛相データと比べると、26度付近のメインピークの $2\theta$ の位置がずれており、その他のピークの位置も異なっている)、またその結晶性はスート状熱分解炭素に比べてフレーク状熱分解炭素の方が比較的高い。

【0022】また自然界に存在する炭素又は炭素化合物中には、<sup>12</sup>Cのほか、<sup>13</sup>Cが1.1%含まれており、この点天然のダイヤモンドについても同じであるが、例えば「Physical Review B」Vol. 42, No. 2, p. 1104~1111(15, July 1990)によれば、その原料として99.9%<sup>12</sup>CH<sub>4</sub>を用いて得られた<sup>12</sup>Cダイヤモンドは、天然の同位体組成のダイヤモンドの約1.5倍にも及ぶ高い熱伝導率(thermal conductivity、銅の約8倍)を有することが報告されている。

【0023】この報告によれば、そのサンプルとしての<sup>12</sup>Cダイヤモンド単結晶を、まずCVD法により、99.9%に富化された<sup>12</sup>CH<sub>4</sub>を使用してダイヤモンドシートを作り、これを粉砕して粉末とし、次いでこの粉末を圧力52000 atm、温度1200℃で、溶融遷移金属から小さいダイヤモンド種結晶上に成長させるこ※50

\*きいほど異方性が大いことを表わし、通常の黒鉛のBAF値は2以下である。

【0019】

【数 1】

※とにより合成している。この合成法によれば、そのように、まずCVD法により炭素源としてのダイヤモンド粉末を作る必要があるが、このCVD法による収率は通常1%以下でしか得られず、このためこれを原料とするにしても、最終的にダイヤモンド単結晶を合成するには、別途その粉末を得る工程を必要とするのに加え、その収率上も大きな問題がある。

【0024】これに対して、本発明の合成方法によれば、<sup>12</sup>Cと<sup>13</sup>Cを通常の比率で含む(すなわち天然ダイヤモンドのように<sup>13</sup>Cを1.1%含む)ダイヤモンド単結晶のほか、炭素源としてのフレーク状熱分解炭素を製造するその時点において、原料炭化水素ガス中又は原料一酸化炭素中のその比率、例えばメタン中のその比率を選ぶことで、すなわち同位体組成を変化させたメタンを使用することにより、<sup>12</sup>Cと<sup>13</sup>Cとを任意の比率で含むダイヤモンド単結晶を合成することができる。

【0025】このように、本発明によれば、例えば濃縮<sup>12</sup>CH<sub>4</sub>を原料として得られたフレーク状熱分解炭素を炭素源とすることにより、前述のような熱伝導率の高い<sup>12</sup>Cダイヤモンド単結晶を合成することができ、またフレーク状熱分解炭素は収率約40%以上で得られるが、これをそのまま炭素源とすることができるため、その収率上も格段に向上させることができるものである。

【0026】また本発明の実施に際して適用する圧力及び温度としては、ダイヤモンド安定領域内の条件であれば特に限定はないが、好ましくは圧力約5~6.5 GPa、温度約1300~1500℃で実施することができる。また融剤としては、融剤法用として知られている金属又は合金(含、混合物)であれば何れも使用できるが、好ましくはFe、Co、Ni、これら金属相互の合金又はこれら鉄族金属と他の金属(Al等)との合金を用いることができる。

【0027】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明するが、この実施例に限定されないことは勿論である。図3及び図4は、それぞれ、本実施例で使用した試料構成及び超高压装置を示すものである。

【0028】図3のとおりの、本実施例における試料構成は図5に示す試料構成とほぼ同様であり、共通する部分については同一の符号を用いている。1は炭素源、2は金属溶媒(=融剤)、3は白金箔、4はダイヤモンド種結晶であり、図示のとおりの白金箔3はダイヤモンド種結晶4と融剤2との間に配置するが、これは合成操作の初

期段階でその種結晶4が溶解してしまうことを防ぐためである。また、6は黒鉛製のヒーター、7は圧力媒体、8は、圧力媒体7を封止するためその周辺に設けた鉄製の封止リングである。本実施例では、融剤2としてコバルトを、また圧力を均一に伝えるための圧力媒体7としては「 $\text{NaCl} + 10\text{wt}\% \text{ZrO}_2$ 」を使用した。

【0029】この構成試料をダイヤモンドの安定条件でかつ融剤が溶解する高温高压下の条件に保持すると、種結晶上にダイヤモンド単結晶が成長するが、円筒形のヒーターを用いる場合、その中央部が比較的高温になり、その上下周辺部の温度は低くなるので、この性質を利用して融剤の中央側（高温）と下側（低温）に温度差をつくりだすことができる。このため炭素源が中央部すなわち高温部に位置するように配置するが、これにより高温である上側の原料炭素を融剤に溶解させ、低温である下側の種結晶上にダイヤモンド単結晶として析出させるものである。

【0030】次に、図4は本実施例で用いたいわゆるフラットベルト型の超高压装置の断面図を示すものである。図示のとおり、この装置は基本的に超硬合金を用いたシリンダー（円筒状）及びアンビル（anvil）からなり、図4中、9はガスケットである。このガスケット9はアンビルとシリンダーの間で圧力を封止するためのもので、本実施例ではその材質としてパイロフェライトを用いている。このシリンダー及びアンビルで形成される空間中に図3のとおり構成試料を配置するが、加熱は、アンビルからモリブデン製電極10、ステンレス製の電極11及び上下一対の通電リング（鉄製）12を通して黒鉛ヒーター6に電流を流すことにより行われる。また黒鉛ヒーター6の上下には、断熱のためにジルコニア板13を使用している。

【0031】《実施例》以上、図3の構成試料及び図4の超高压装置を使用して、本発明によるダイヤモンド単結晶の合成実験を実施した。炭素源としては、キャリアガスを使用することなく（すなわち100%メタン）、LNGから精留して得られた $^{12}\text{C}$ メタンガス（ $^{12}\text{CH}_4$  純度：99.9%）を分解処理温度1900℃、炉内圧力2 torrで熱分解させて黒鉛シート基材に沈積させ、剥離することにより得られたものであり、これは光学顕微鏡によるとColumnar状の構造をしており、かさ密度1.10 g/cm<sup>3</sup>、BAF値=5、BE T表面積3.1 m<sup>2</sup>/gを有するものである。

【0032】このフレーク状熱分解炭素202 mgを炭素源1として使用し、コバルト金属溶媒（融剤）2上に配置して図3のとおり試料構成とし、この構成試料を図4におけるシリンダー中に配置した後、上下のアンビルにより加圧をして圧力媒体7を6.1 GPaに加圧した。この加圧後、モリブデン製電極10、ステンレス製電極11から通電リング12を通して黒鉛ヒーター6に電流〔AC、2.71 V、637 A（アンペア）〕を流

して温度1430℃に加熱した。この場合、その操作温度はPt/Pt13%Rh熱電対により校正した。

【0033】上記操作状態を16時間23分間継続させた後、電流を切り、その後加圧状態を解除したところ、一個の黄色いダイヤモンド単結晶が生成していた。この生成ダイヤモンドの重量は7.9 mgであり、この結晶の表面のファセットは主に{111}であり、その他{100}及び{113}が現れた。

【0034】《比較例》前述図3の構成試料及び図4の超高压装置を使用し、炭素源1としてスート状熱分解炭素163 mgを使用した以外は、《実施例》の場合と同じ圧力6.1 GPa及び温度1430℃（AC、2.72 V、635 A）で操作した。このスート状熱分解炭素としては、キャリアガスを使用することなく（すなわち100%メタン）、LNGを精留して得られた $^{12}\text{C}$ メタンガス（ $^{12}\text{CH}_4$  純度：99.9%）を分解処理温度1900℃、炉内圧力25 torrで熱分解させて黒鉛シート基材上に沈積させ、その基材から剥離することにより得られたものであり、その特性としては、かさ密度0.87 g/cm<sup>3</sup>、BAF値=1、BE T表面積55.6 m<sup>2</sup>/gを有するものである。

【0035】上記その操作状態を18時間33分間継続させた後、電流を切り、その後加圧状態を解除したが、ダイヤモンド単結晶は全く生成していなかった。また炭素源1として上記と同じスート状熱分解炭素を186 mgを使用した以外は、上記の場合と同じ圧力6.1 GPa及び温度1430℃（AC、2.68 V、639 A）で操作し、この操作状態を10時間18分間継続させた後、電流を切り、加圧状態を解除したが、この場合にもダイヤモンド単結晶は全く生成していなかった。

【0036】以上、実施例及び比較例から明らかなとおり、スート状熱分解炭素を炭素源としたのでは、ダイヤモンド安定領域内の高温高压下、温度差法を適用してもダイヤモンド単結晶を合成することは不可能であるのに対して、本発明によれば、その炭素源としてフレーク状熱分解炭素を使用することにより、ダイヤモンド安定領域内の高温高压下、温度差法によりダイヤモンド単結晶を有効に合成することができるものである。

【0037】《参考例》比較例で用いた炭素源と同じスート状熱分解炭素に対して熱処理（前処理）をし、これを使用してダイヤモンドの合成実験を行った。この熱処理は、そのスート状熱分解炭素を真空中（約 $10^{-1}$  Pa）、温度2000℃で8時間加熱処理をして得たものである。ここでも前述図3の構成試料及び図4の超高压装置を使用し、炭素源1として上記熱処理スート状熱分解炭素169 mgを使用した以外は《実施例》及び《比較例》の場合と同じ圧力6.1 GPa及び温度1430℃（AC、2.71 V、638 A）で操作した。

【0038】この操作状態を19時間25分間継続させた後、電流を切り、その後加圧状態を解除したところ、一

個の黄色いダイヤモンド単結晶が生成していた。この生成ダイヤモンドの重量は2.7mgであり、この結晶表面のファセットは{111}のみであった。このように、スート状熱分解炭素を炭素源としてダイヤモンド単結晶を有効に合成し得るためには、スート状熱分解炭素に前処理(熱処理)を施すことが必要不可欠である。

#### 【0039】

【発明の効果】以上のとおり、本発明によれば、ダイヤモンド安定領域内の高温高圧下、温度差法により炭素源原料からダイヤモンド単結晶を合成する方法において、その炭素原料としてフレーク状の熱分解炭素を使用することにより、従来必要不可欠であった前処理を必要とすることなく、また前述のように薄膜法等によるダイヤモンド微結晶の作製を経ることなく、ダイヤモンド単結晶を有効に合成することができる。

【0040】また本発明は、 $^{12}\text{C}$ と $^{13}\text{C}$ を通常の比率で含むダイヤモンド単結晶のほか、炭素源としてのフレーク状熱分解炭素を製造するその時点においてその比率を選ぶことだけで、 $^{12}\text{C}$ と $^{13}\text{C}$ とを任意の比率で含むダイヤモンド単結晶を合成することができ、これにより例えば $^{12}\text{C}$ リッチの熱伝導率の高いダイヤモンド単結晶をも合成することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】フレーク状熱分解炭素とスート状熱分解炭素の一例を示す顕微鏡写真。

【図2】熱分解炭素についてのX線回折の結果を示す図。

【図3】本実施例で使用した試料構成図。

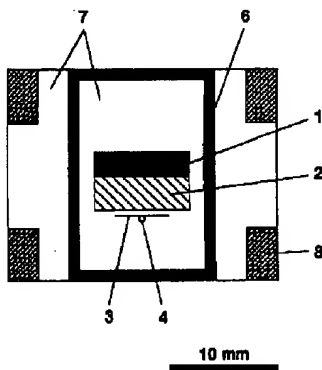
【図4】本実施例で使用した超高压装置を示す図。

【図5】温度差法における試料構成等の一例を示す図。

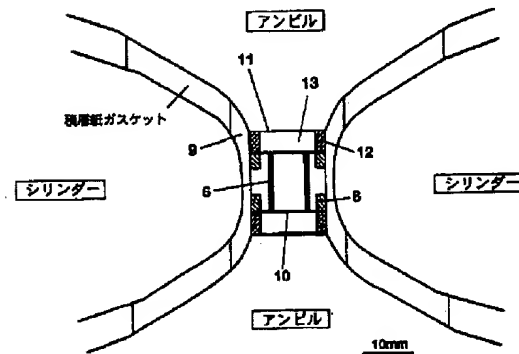
#### 【符号の説明】

- 1 炭素源
- 2 金属溶媒(融剤)
- 3 白金箔
- 4 ダイヤモンド種結晶
- 5 合成ダイヤモンド結晶
- 6 黒鉛製ヒーター
- 7 圧力媒体
- 8 鉄製封止リング
- 9 ガasket
- 10、11 電極
- 12 一對の通電リング
- 13 ジルコニア板

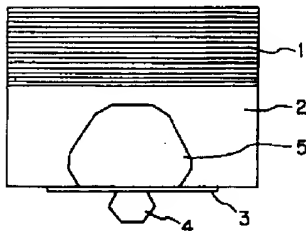
【図3】



【図4】



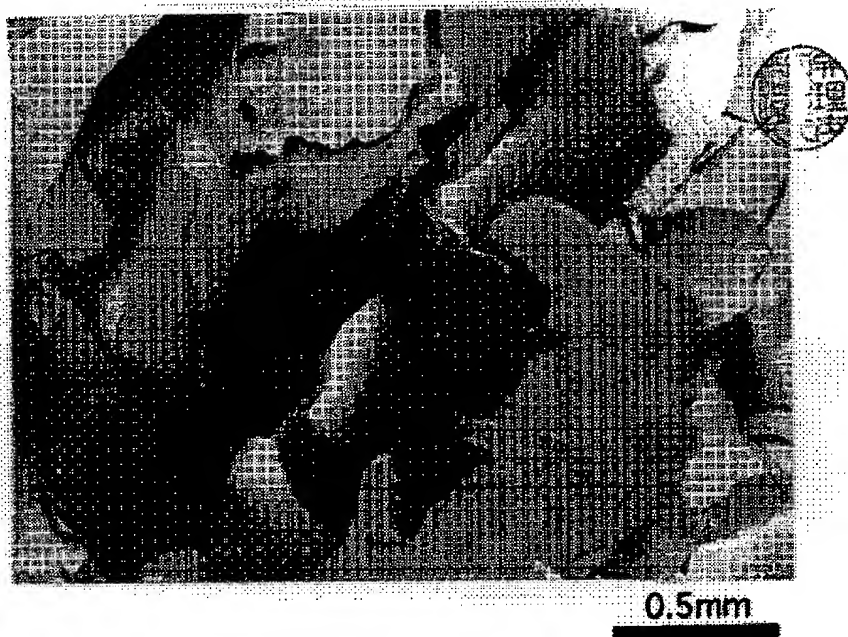
【図5】



【図1】

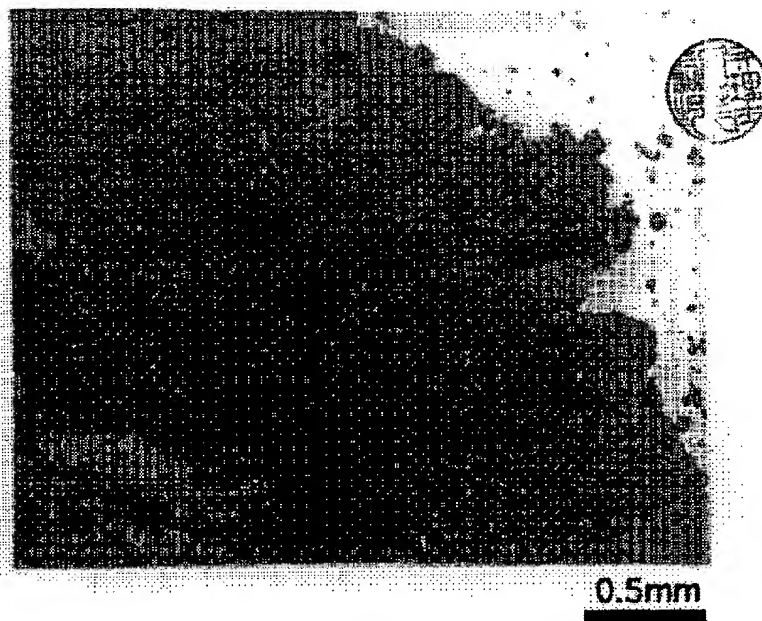
(a)

図面代用写真



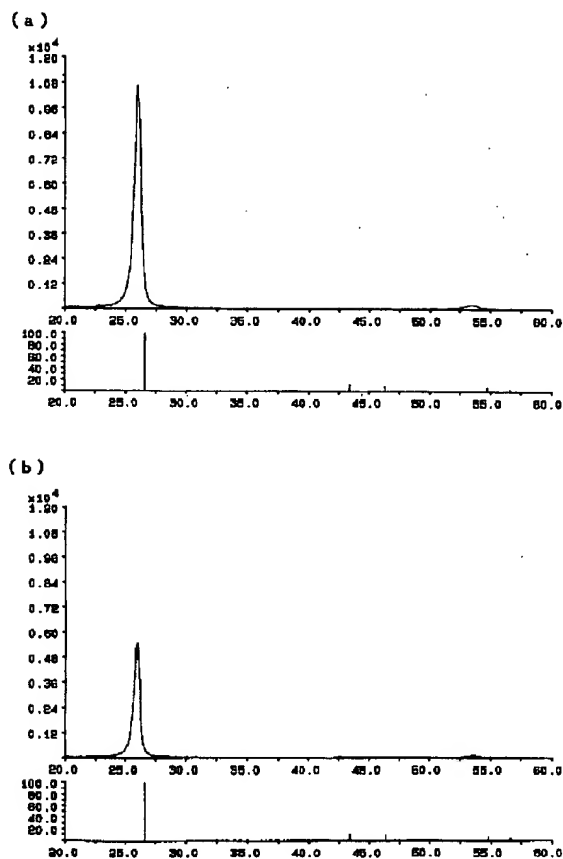
(b)

写真



写真

【図2】




---

フロントページの続き

(72)発明者 山下 敏  
東京都豊島区東池袋1-48-6  
(72)発明者 蜜石 雅行  
香川県三豊郡大野原町大字中姫2181-2  
東洋炭素株式会社内

(72)発明者 東城 哲朗  
香川県三豊郡大野原町大字中姫2181-2  
東洋炭素株式会社内  
(72)発明者 片岡 加寿弘  
埼玉県所沢市山口106-33